

S/N: 10/671,519

3/10/2004

Docket No.: SHD-103-USAP

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Serial No.: 10/671,519

Confirmation No.: 9109

Applicant: Takafumi KUROSAWA

Art Unit: 1617

Filed: September 29, 2003

Examiner: TO BE ASSIGNED

Docket No: SHD-103-USAP

Customer No: 28892

For: External Skin Preparation

**PRIORITY DOCUMENT TRANSMITTAL**

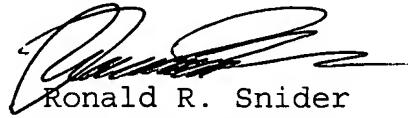
Assistant Commissioner of  
Patents and Trademarks  
Washington, D.C. 20231

Sir:

In accordance with the provisions of 37 CFR 1.55 and the requirements of 35 U.S.C. 119, attached hereto is a certified copy of the priority document, **Japanese Patent Application No. 2002-285382, filed on September 30, 2002.**

It is respectfully requested that applicant be granted the benefit of the filing date of the foreign application and that receipt of this priority document be acknowledged in due course.

Respectfully submitted,



Ronald R. Snider  
Reg. No. 24,962

Date: March 10, 2004

Snider & Associates  
Ronald R. Snider  
P.O. Box 27613  
Washington, D.C. 20038-7613  
(202) 347-2600

RRS/jt

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2002年 9月30日  
Date of Application:

出願番号 特願2002-285382  
Application Number:

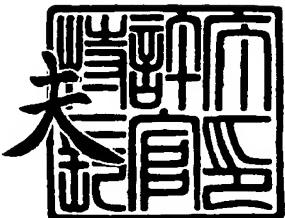
[ST. 10/C] : [JP2002-285382]

出願人 株式会社資生堂  
Applicant(s):

2003年10月17日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今井康



【書類名】 特許願

【整理番号】 SD020027

【提出日】 平成14年 9月30日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 A61K 07/00

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市都筑区早渕 2-2-1 株式会社資生堂

リサーチセンター（新横浜）内

【氏名】 黒沢 卓文

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市金沢区福浦 2-12-1 株式会社資生

堂 リサーチセンター（金沢八景）内

【氏名】 板垣 宏

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市金沢区福浦 2-12-1 株式会社資生

堂 リサーチセンター（金沢八景）内

【氏名】 上月 裕一

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市都筑区早渕 2-2-1 株式会社資生堂

リサーチセンター（新横浜）内

【氏名】 塩 庄一郎

【特許出願人】

【識別番号】 000001959

【氏名又は名称】 株式会社資生堂

【代理人】

【識別番号】 100094570

【弁理士】

【氏名又は名称】 ▲高▼野 俊彦

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 019138

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0105015

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 皮膚外用剤

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 オクチルメトキシシンナメートと、酸化チタン及び／又は酸化亜鉛粉末と、ポリオキシエチレンメチルグルコシド及び／又はポリプロピレンメチルグルコシドを含有する皮膚外用剤。

【請求項 2】 前記皮膚外用剤が日焼け止め化粧料である請求項 1 記載の皮膚外用剤。

【請求項 3】 ポリオキシエチレンメチルグルコシド及び／又はポリプロピレンメチルグルコシドからなる、酸化チタン及び／又は酸化亜鉛粉末を含有する皮膚外用剤中のオクチルメトキシシンナメートの刺激緩和剤。

【請求項 4】 オクチルメトキシシンナメートと酸化チタン及び／又は酸化亜鉛粉末とを含有する皮膚外用剤に、ポリオキシエチレンメチルグルコシド及び／又はポリプロピレンメチルグルコシドを配合して、オクチルメトキシシンナメートの皮膚刺激を緩和する方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は刺激緩和効果を有する皮膚外用剤に関する。さらに詳しくは、オクチルメトキシシンナメートと酸化チタン及び／又は酸化亜鉛粉末とを含有する皮膚外用剤に、ポリオキシエチレンメチルグルコシド及び／又はポリプロピレンメチルグルコシドを配合して、オクチルメトキシシンナメートの皮膚刺激を緩和した皮膚外用剤に関する。

【0002】

【従来の技術】

紫外線吸収剤は日焼け止め化粧料を始めとする皮膚外用剤に配合されている。特に日焼け止め化粧料においては、紫外線散乱剤として、酸化チタン、酸化亜鉛等の粉末が、紫外線吸収剤のオクチルメトキシシンナメートとともに配合されることが多い（例えば特許文献 1 を参照）。

**【0003】**

一方、日焼け止め化粧料中のオクチルメトキシシンナメートは敏感肌の使用者が刺激を感じる場合がある。

そのため、その刺激を緩和する方法が強く求められていた（例えば特許文献2を参照）。特許文献2には、紫外線吸収剤による皮膚刺激をポリエチレングリコールの配合により緩和する方法が記載され、実施例1及び実施例2には、オクチルメトキシシンナメートと微粒子酸化亜鉛や二酸化チタン粉末を含有し、ポリエチレングリコールにより刺激緩和された皮膚外用剤及び日焼け止め化粧料が開示されている。

**【0004】****【特許文献1】**

特開平7-267842号公報

**【特許文献2】**

特開2002-212024号公報

**【0005】****【発明が解決しようとする課題】**

本発明者らは上述の観点から低刺激性の日焼け止め化粧料を得るべく、紫外線吸収剤の刺激緩和方法について鋭意研究を続けた結果、一定量のオクチルメトキシシンナメートを皮膚外用剤に配合すると皮膚刺激は生じないが、これに酸化チタンや酸化亜鉛粉末を配合すると皮膚刺激を生じ、さらにポリオキシエチレンメチルグルコシド及び／又はポリプロピレンメチルグルコシドを配合するとその皮膚刺激が緩和されることを見出し本発明を完成するに至った。

**【0006】****【課題を解決するための手段】**

すなわち、本発明は、オクチルメトキシシンナメートと、酸化チタン及び／又は酸化亜鉛粉末と、ポリオキシエチレンメチルグルコシド及び／又はポリプロピレンメチルグルコシドを含有する皮膚外用剤を提供するものである。

**【0007】**

また、本発明は、前記皮膚外用剤が日焼け止め化粧料である上記の皮膚外用剤

を提供するものである。

#### 【0008】

さらに、本発明は、ポリオキシエチレンメチルグルコシド及び／又はポリプロピレンメチルグルコシドからなる、酸化チタン及び／又は酸化亜鉛粉末を含有する皮膚外用剤中のオクチルメトキシシンナメートの刺激緩和剤を提供するものである。

#### 【0009】

また、本発明は、オクチルメトキシシンナメートと酸化チタン及び／又は酸化亜鉛粉末とを含有する皮膚外用剤に、ポリオキシエチレンメチルグルコシド及び／又はポリプロピレンメチルグルコシドを配合して、オクチルメトキシシンナメートの皮膚刺激を緩和する方法を提供するものである。

#### 【0010】

##### 【発明の実施の形態】

以下、本発明を詳述する。

#### 【0011】

本発明の皮膚外用剤には紫外線吸収剤としてオクチルメトキシシンナメートが配合される。オクチルメトキシシンナメートは多くの市販品があり、それらの市販品を利用できる。例えば、パルソールMCXの商品名（ジボタン社）で市販されている。

#### 【0012】

オクチルメトキシシンナメートの配合量は、皮膚外用剤の製品設計において目的とするS P F 値に応じ適宜決定される。通常、1. 0～15 質量%程度が配合され、好ましくは2. 0～10 質量%である。

#### 【0013】

酸化チタン及び／又は酸化亜鉛粉末は紫外線散乱剤として機能するため、日焼け止め化粧料にオクチルメトキシシンナメートとともに配合されることが多い。本発明者により、刺激活性を有するオクチルメトキシシンナメートは皮膚外用剤中の配合量が10%以下では必ずしも刺激が発現しないが、上記粉末が配合されると皮膚刺激が発現することが見出された。これらの粉末はオクチルメトキシシ

ンナメートの刺激を増強させる作用があるものと考えられる。

本発明において、酸化チタン及び／又は酸化亜鉛粉末は化粧料に通常配合される市販品の粉末が使用できる。

上記粉末は、通常、針状、紡錘状、球状、粒状の粉末が使用される。また、粒子径が0.1  $\mu$ m以下の微粒子粉末が好ましい。

また、メチルハイドロジエンポリシロキサンやシランカップリング剤などのシリコーン処理；金属石鹼処理；パーフルオロアルキルリン酸ジエタノールアミン塩やパーフルオロアルキルシラン等のフッ素処理、デキストリン脂肪酸エステル処理等により、疎水化処理した上記粉末も好ましい。

#### 【0014】

上記粉末の配合量は特に限定されない。皮膚外用剤全量に対して、通常1.0～40%（質量百分率）の範囲で適宜決定される。日焼け止め乳化化粧料においては、目的とするSPF値、使用性及び安定性の観点から、化粧料全量に対して3.0～25%（質量百分率）が好ましい。

#### 【0015】

本発明においてポリオキシエチレンメチルグルコシド及び／又はポリプロピレンメチルグルコシドはオクチルメトキシシンナメートの刺激緩和剤として機能している。

ポリオキシエチレンメチルグルコシドは、メチルグルコシドに酸化エチレンを付加重合して得られる。本発明においては市販品を利用出来る。例えば、商品名グルカムE-10、20（アマコール社）として市販されているポリオキシエチレンメチルグルコシド（10E.O.）や、商品名NIKKOL BMG-10、-20（日光ケミカルズ）等がある。

また、ポリプロピレンメチルグルコシドはメチルグルコシドに酸化プロピレンを付加重合して得られる。本発明においては市販品を利用出来る。例えば、商品名グルカムP-10、P-20（池田物産）として市販されている。

#### 【0016】

ポリオキシエチレンメチルグルコシド及び／又はポリプロピレンメチルグルコシドの配合量はオクチルメトキシシンナメートの配合量に応じて適宜決定される

。皮膚外用剤全量に対して、1. 0～20質量%が好ましく、さらに好ましくは2. 0～15質量%である。

### 【0017】

本発明の皮膚外用剤の剤形は限定されない。例えば、液状、乳液状、ゲル状、ペースト状、クリーム状がある。

日焼け止め化粧料として好ましく使用されるがその製品形態は制限されない。日焼け止め化粧料とは紫外線から皮膚を保護する化粧料を意味する。

### 【0018】

本発明の皮膚外用剤は、上記必須成分を、皮膚外用剤の製剤成分（例えば、油分、水、エタノール、保湿剤、界面活性剤、増粘剤、金属封鎖剤、薬剤、色素、香料）に配合し、目的の剤形に応じて、常法により製造される。

### 【0019】

#### 【実施例】

実施例により本発明を具体的に説明する。配合量は質量%である。皮膚刺激は下記の試験により評価した。

### 【0020】

#### 「連續皮膚刺激試験」

試験方法：

1. 被験液0. 05mlをモルモットの背部2×2cmに塗布（1回目塗布）する。
2. 24時間後に2回目の塗布を行う。
3. さらに24時間後に3回目の塗布を行う。

評価方法：

2回目及び3回目の塗布前及び3回目塗布後24時間後に、紅斑、浮腫等の皮膚反応を肉眼で観察する。評価は以下の基準で行い、3回の評点の平均値を皮膚刺激スコアとする。

#### 皮膚反応の評価基準

皮膚反応の程度	評点
紅斑が全く認められないもの	0

わずかな紅斑が認められるもの	1
明らかな紅斑がみとめられるもの	2
強紅斑あるいはわずかな浮腫、痂皮がみとめられるもの	3
明らかな浮腫、痂皮が認められるもの	4

## 【0021】

「表1」に示す成分を混合し皮膚外用剤を調製した。この皮膚外用剤を試験液として上記試験を行って刺激性を評価した。なお、オクチルメトキシシンナメートの配合量は、酸化チタン及び／又は酸化亜鉛と共に存しなければ刺激が発現しない範囲の7.5質量%である。微粒子酸化亜鉛は、メチルハイドロジェンポリシリコキサンで表面処理したFINEX-50（平均粒子径0.02μm：堺化学株式会社製）を使用した。

## 【0022】

【表1】

成分	配合量(質量%)			
	実施例1～4 比較例3～19	比較例1	比較例2	
微粒子酸化亜鉛(*1)	20	20	—	
オクチルメトキシシンナメート	7.5	7.5	7.5	
デカメチルシクロペンタシロキサン	残余(25～39.4)	40	60	
メチルポリシリコキサン(*2)	12	12	12	
ジメチコンコポリオール(*3)	0.5	0.5	0.5	
水	20	20	20	
比較配合成分	0.5～15	—	—	

(\*1) FINES-50(堺化学社製)

(\*2) シリコーンKF-96(信越化学社製)

(\*3) シリコーンSC9450(信越化学社製)

比較配合成分は、実施例では刺激緩和剤として配合されるポリオキシエチレンメチルグルコシド、比較例では前記特許文献2記載の刺激緩和剤であるポリエチレンングリコール及びその他の保湿剤である。なお、比較例1は比較配合成分を配合しない処方、比較例2は比較配合成分及び酸化亜鉛粉末を配合しない処方である。

比較配合成分及びその配合量と、試験結果を「表2」に示す。「表2」の結果を図1に示す。

【表2】

比較配合成分及び配合量		平均スコア	標準偏差
実施例1	ポリオキシエチレンメチルグルコシド(*4) 2%	0.49	0.30
実施例2	ポリオキシエチレンメチルグルコシド(*4) 5%	0.39	0.14
実施例3	ポリオキシエチレンメチルグルコシド(*4) 10%	0.44	0.51
実施例4	ポリオキシエチレンメチルグルコシド(*4) 15%	0.44	0.51
比較例1	—	1.10	0.40
比較例2	— (酸化亜鉛粉末 抜去)	0.00	0.00
比較例3	1, 3-ブチレングリコール 5%	0.83	0.35
比較例4	1, 3-ブチレングリコール 10%	1.11	0.51
比較例5	1, 3-ブチレングリコール 15%	1.00	0.33
比較例6	アルキレンオキシド誘導体(*5) 5%	1.11	0.38
比較例7	アルキレンオキシド誘導体(*5) 10%	1.11	0.51
比較例8	アルキレンオキシド誘導体(*5) 15%	1.00	0.00
比較例9	ポリエチレングリコール(分子量1500) 5%	1.00	0.30
比較例10	ポリエチレングリコール(分子量1500) 10%	0.89	0.38
比較例11	ポリエチレングリコール(分子量1500) 15%	0.78	0.19
比較例12	ワセリン 5%	0.78	0.27
比較例13	ワセリン 10%	0.78	0.19
比較例14	ワセリン 15%	0.78	0.19
比較例15	ソルビトール 5%	0.89	0.19
比較例16	ソルビトール 10%	0.89	0.19

(\*4) Glucam E-10(アマコール社製)

(\*5) ポリオキシエチレン・ポリオキシプロピレンランダム重合体メチルエーテル

上記結果より、特許文献2記載の刺激緩和剤であるポリエチレングリコールやその他の保湿剤を配合した比較例に対して、実施例の平均スコアは極めて小さく、本発明における刺激緩和効果が極めて高いことが分る。なお、比較例1及び2から、酸化亜鉛粉末を配合しない場合はオクチルメトキシシンナメートの皮膚刺激は発現せず両者が共存すると刺激が発現することが分る。

### 【0023】

以下に、本発明のその他の実施例を挙げる。いずれも刺激緩和効果を有し、使用感に優れた皮膚外用剤である。

### 【0024】

#### 実施例5 サンスクリーン

オクチルメトキシシンナメート	7. 5
ポリプロピレングリコール1000	2. 0
t-ブチルメトキシジベンゾイルメタン	0. 1
二酸化チタン	5. 0
デカメチルシクロペンタシロキサン	30. 0

P O E・メチルポリシロキサン共重合体	3. 0
有機変性モンモリロナイト	0. 8
1, 3-ブチレングリコール	5. 0
ポリオキシエチレンメチルグルコシド (Glucam E-10)	3. 0
防腐剤	適量
香料	適量
精製水	残余

(製法) 各成分を攪拌混合し、サンスクリーンを得る。

### 【0025】

#### 実施例6 化粧水

A オクチルメトキシシンナメート	1. 0
テトラオクタン酸ペンタエリスリチル	1. 0
ポリオキシエチレン(20)オレイルアルコールエーテル	0. 5
エタノール	60. 0
香料	適量
防腐剤	適量
B ソルビット	2. 0
ジプロピレングリコール	6. 0
ポリオキシエチレンメチルグルコシド (Glucam E-10)	10. 0
乳酸	0. 1
クエン酸	0. 1
クエン酸ナトリウム	0. 05
ヒドロキシメトキシベンゾフェノン	
スルホン酸ナトリウム	適量
エデト酸三ナトリウム	適量
精製水	残余

(製法) Bを混合して調整する。別にエタノールにAのほかの成分を溶解してAを調整し、これをBに加えて可溶化し、ろ過して化粧水を得る。

### 【0026】

#### 実施例7 日焼け止め乳化ファンデーション

A 精製水	52.0
ポリオキシプロピレンメチルグルコシド	
(グルカム P-20)	5.0
エタノール	7.0
B タルク	7.0
二酸化チタン	10.0
酸化亜鉛	2.0
無水ケイ酸	2.0
ナイロンパウダー	4.0
着色顔料	2.0
C オクチルメトキシンナメート	15.0
テトラオクタン酸ペンタエリスリチル	4.0
オクタメチルシクロテトラシロキサン	10.0
ロジンペンタエリスリットエステル	1.5
ジイソオクタン酸ネオペンチルグリコール	5.0
トリイソオクタン酸グリセリン	2.0
ポリオキシエチレン変性ジメチルポリシロキサン	
	1.5
トリメチルシロキシケイ酸樹脂	5.0

(製法) Aを攪拌後、十分に混合粉碎されたBを添加し、ホモミキサー処理する。Cを溶解後これに加えホモミキサー処理し、日焼け止め乳化ファンデーションを得る。

### 【0027】

#### 【発明の効果】

本発明の皮膚外用剤は、オクチルメトキシンナメートの皮膚刺激緩和効果に

優れており、優れた使用感と日焼け止め効果とを有するものである。

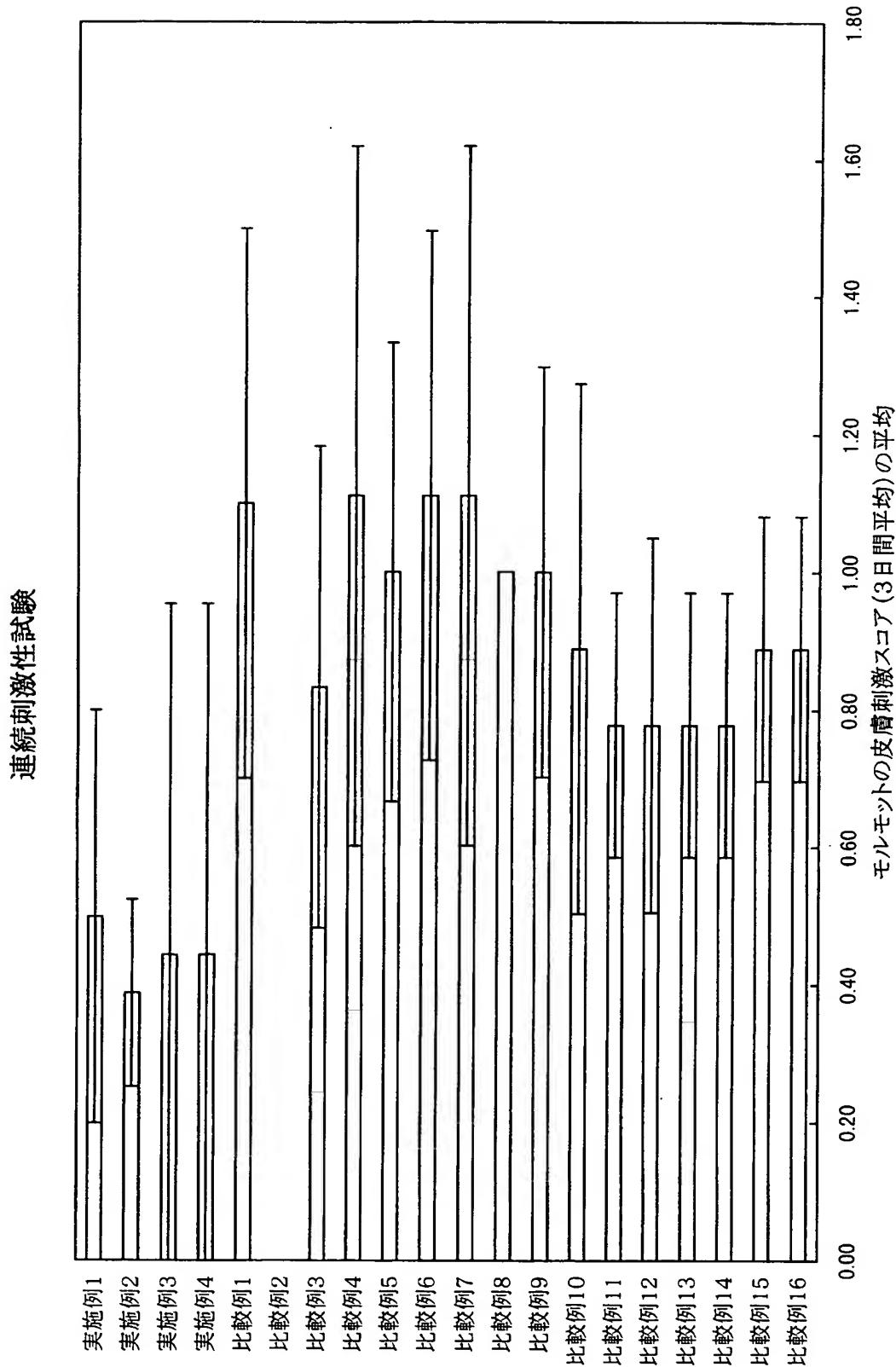
【図面の簡単な説明】

【図 1】

連続皮膚刺激試験結果を示すグラフである。

【書類名】 図面

【図 1】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 日焼け止め効果を有する皮膚外用剤には、紫外線吸収剤のオクチルメトキシシンナメートと紫外線散乱剤の酸化チタン、酸化亜鉛等の粉末が紫外線吸収剤とともに配合されることが多い。オクチルメトキシシンナメートは酸化チタンや酸化亜鉛等の粉末とともに配合されると皮膚刺激が増強する。本発明はその皮膚刺激を緩和できる皮膚外用剤を提供することを目的とする。

【解決手段】 オクチルメトキシシンナメートと、酸化チタン及び／又は酸化亜鉛粉末と、ポリオキシエチレンメチルグルコシド及び／又はポリプロピレンメチルグルコシドを含有する皮膚外用剤である。

【選択図】 なし

特願 2002-285382

出願人履歴情報

識別番号 [000001959]

1. 変更年月日 1990年 8月27日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都中央区銀座7丁目5番5号  
氏 名 株式会社資生堂